

10/661, 837

AN 1985:489157 CAPLUS
 DN 103:89157
 ED Entered STN: 22 Sep 1985
 TI Coloring compositions
 PA Toshiba Corp., Japan
 SO Jpn. Kokai Tokkyo Koho, 15 pp.
 CODEN: JKXXAF
 DT Patent
 LA Japanese
 IC ICM C09B067-42
 CC 42-9 (Coatings, Inks, and Related Products)
 FAN.CNT 1

	PATENT NO.	KIND	DATE	APPLICATION NO.	DATE
PI	JP 60072961	A2	19850425	JP 1983-182451	19830930
PRAI	JP 1983-182451		19830930		

CLASS

PATENT NO.	CLASS	PATENT FAMILY CLASSIFICATION CODES
JP 60072961	ICM	C09B067-42
	IPCI	C09B0067-42 [ICM,4]
	IPCR	C09B0067-00 [I,C]; C09B0067-42 [I,A]

AB The title compns. with easy coloration control and useful in photocurable coatings contain a leuco compound, a Si compound containing silanol or silanol-forming group(s), a metal complex, and optionally an epoxy compound. Thus, a composition from malachite green leuco base [129-73-7] 1, Celloxide 2021 [25085-98-7] 100, tris(Et acetoacetato)aluminum [15306-17-9] 1.0, tert-butylperoxytriphenylsilane [18751-58-1] 2.0, and Ph₂CO 0.5 part gave a 15-μ UV-cured colored coating (on triplate) with pencil hardness 2H.

ST epoxy coating photocurable colored; aluminum complex coloring compn; silanol deriv coloring compn

IT Coloring materials

(leuco compound-metal complex-silanol derivative blends)

IT Coating materials

(UV-curable, epoxy resins, containing coloring compns.)

IT Coating materials

(photocurable, epoxy resins, containing coloring compns.)

IT 25068-38-6 25085-98-7

RL: TEM (Technical or engineered material use); USES (Uses)

(coatings, photocurable, containing coloring compns.)

IT 791-31-1 1829-41-0 2553-19-7 18751-58-1 31731-51-8 93522-46-4

RL: USES (Uses)

(coloring compns. containing leuco compds. and metal complexes and)

IT 3264-82-2 13476-99-8 13963-57-0 14024-18-1 14024-58-9 14024-63-6

14325-56-5 15306-17-9 15556-37-3 17501-44-9 20492-39-1

21679-31-2 21679-46-9 46369-53-3

RL: USES (Uses)

(coloring compns. containing leuco compds. and silanol derivs. and)

IT 129-73-7 509-72-8 1552-42-7 5339-80-0 97740-90-4

RL: USES (Uses)

(coloring compns., containing metal complexes and silanol derivs.)

RN 1552-42-7 REGISTRY

ED Entered STN: 16 Nov 1984

CN 1(3H)-Isobenzofuranone, 6-(dimethylamino)-3,3-bis[4-(dimethylamino)phenyl]-(9CI) (CA INDEX NAME)

OTHER CA INDEX NAMES:

CN Phthalide, 6-(dimethylamino)-3,3-bis[p-(dimethylamino)phenyl]- (6CI, 7CI, 8CI)

OTHER NAMES:

CN 3,3-Bis[4-(dimethylamino)phenyl]-6-(dimethylamino)-1,3-dihydroisobenzofuran-1-one

CN 3,3-Bis[4-(dimethylamino)phenyl]-6-(dimethylamino)phthalide

CN 3,3-Bis[p-(dimethylamino)phenyl]-6-(dimethylamino)phthalide

CN 6-(Dimethylamino)-3,3-bis[4-(dimethylamino)phenyl]-1(3H)-isobenzofuranone

CN Color Former CVL

CN Copikem 1 Blue

CN Copikem I

CN Crystal Violet lactone

CN CVL

CN NSC 32991

CN NSC 3562

CN Pergascript Blue I 2R

FS 3D CONCORD

DR 129652-58-0

MF C26 H29 N3 O2

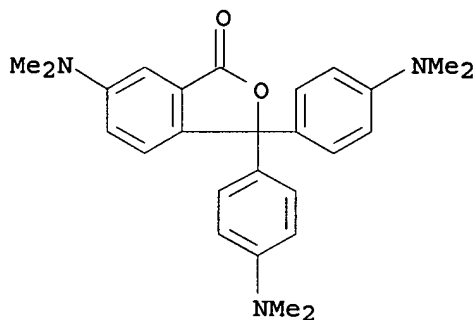
CI COM

LC STN Files: BEILSTEIN*, BIOSIS, CA, CAOLD, CAPLUS, CASREACT, CBNB, CHEMCATS, CHEMLIST, CIN, CSCHM, IFICDB, IFIPAT, IFIUDB, MEDLINE, PIRA, PROMT, TOXCENTER, USPAT2, USPATFULL

(*File contains numerically searchable property data)

Other Sources: DSL**, EINECS**, TSCA**

(**Enter CHEMLIST File for up-to-date regulatory information)



PROPERTY DATA AVAILABLE IN THE 'PROP' FORMAT

2160 REFERENCES IN FILE CA (1907 TO DATE)

6 REFERENCES TO NON-SPECIFIC DERIVATIVES IN FILE CA

2160 REFERENCES IN FILE CAPLUS (1907 TO DATE)

15 REFERENCES IN FILE CAOLD (PRIOR TO 1967)

DERWENT-ACC-NO: 1985-137872

DERWENT-WEEK: 198523

COPYRIGHT 2006 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: Colour forming compsn.- comprises leuco, silanol,
organometallic and epoxy cpds.

PATENT-ASSIGNEE: TOSHIBA KK[TOKE]

PRIORITY-DATA: 1983JP-0182451 (September 30, 1983)

PATENT-FAMILY:

PUB-NO	PUB-DATE	LANGUAGE	PAGES	MAINIPC
<u>JP 60072961 A</u>	April 25, 1985	N/A	015	N/A

APPLICATION-DATA:

PUB-NO	APPL-DESCRIPTOR	APPL-NO	APPL-DATE
JP 60072961A	N/A	1983JP0182451	September 30, 1983

INT-CL (IPC): C09B067/42

ABSTRACTED-PUB-NO: JP 60072961A

BASIC-ABSTRACT:

Colour-forming compsns. comprise (a) leuco cpds., (b) silicon cpds. contg. silanol gp. and/or silanol gp.-forming substits. and (c) organic metal cpds. and opt. (d) epoxy cpds..

(a) includes e.g. fluoran cpds., phenothiazine cpds., azaphthalide cpds. (b) includes e.g. diphenylsilanediol, phenylvinylsilanediol, 1,3-dihydroxy-1,3-dimethyl -1,3-diphenyldisiloxane.

The amts. of (b) and (c) added are above 2 wt.%, pref. above 5 wt.% of (a) for each. (c) includes e.g. trimethoxyaluminium, trispropionatealuminium- m.

The amt. of (d) (e.g. bisphenol-A epoxy resin) used is 1-98 wt.% pref. 2-90 wt.% of (a). Opt. photosensitisers e.g. aromatic hydrocarbons are used.

ADVANTAGE - The present compsns. have quick colourformation. In an example a colour-forming compsn. was prepd. from the soln. prepd. by dissolving 5 g of crystal violet lactone in 200 cc of MEK, the soln. prepd. by dissolving 5 g of triphenylsilanol in MEK and the soln. prepd. by dissolving aluminium (acac)₃ in MEK.

CHOSEN-DRAWING: Dwg.0/0

TITLE-TERMS: COLOUR FORMING COMPOSITION COMPRISE LEUCO SILANOL ORGANO METALLIC
EPOXY COMPOUND

DERWENT-CLASS: E11 E12 E24 G02

CPI-CODES: E05-B03; E05-E01; E06-A02; E06-A03; E06-E03; E06-F04; E26-B; E26-C;
G05-D; G05-F;

CHEMICAL-CODES:

Chemical Indexing M3 *02*

Fragmentation Code

D013 D016 D022 D111 G013 G019 G100 H1 H103 H143
J5 J521 L9 L942 M1 M113 M119 M150 M210 M211
M273 M283 M320 M412 M417 M511 M520 M532 M540 M782
M903 M910 Q318 Q338 Q339 R023

PAT-NO: JP360072961A
DOCUMENT-IDENTIFIER: JP 60072961 A
TITLE: COLOR FORMING COMPOSITION
PUBN-DATE: April 25, 1985

INVENTOR-INFORMATION:

NAME
SUZUKI, SHIYUICHI
WADA, MORIYASU
HAYASE, SHUJI
OONISHI, HIRONOBU

ASSIGNEE-INFORMATION:

NAME	COUNTRY
TOSHIBA CORP	N/A

APPL-NO: JP58182451

APPL-DATE: September 30, 1983

INT-CL (IPC): C09B067/42

US-CL-CURRENT: 523/461

ABSTRACT:

PURPOSE: To provide a color forming compsn. which is excellent in rapid color formability and whose color formation can be easily controlled in the absence or presence of a solvent, consisting of a leuco compd., a specified Si compd. and an organometallic compd.

CONSTITUTION: At least 2wt% Si compd. (A) contg. a silanol group of formula III or IV (wherein $X<SB>1</SB>\sim X<SB>3</SB>$ are each a $1\sim 5$ C alkyl, aryl, aralkyl, alkenyl, acyl; p, q, r are each $0\sim 3$, $p+q+r=3$ or below; "Hydr" is a hydrolyzable group directly attached to the Si atom which can be hydrolyzed in the presence of water at a given temp. to form a silanolic hydroxyl group) and/or a substituent capable of forming a silanol group, at least 2wt% organometallic compd. (B) of at least one metal selected from among Al, Ti, Cr, Zr, Zn, Co, Fe, Cu, Mn, V, N and B, and optionally $1\sim 98$ wt% epoxy resin (C) are blended with a leuco compd. (D) such as a compd. of formula I or II.

COPYRIGHT: (C)1985,JPO&Japio

⑫ 公開特許公報(A)

昭60-72961

⑪ Int. Cl.⁴
C 09 B 67/42

識別記号

庁内整理番号

6464-4H

⑬ 公開 昭和60年(1985)4月25日

審査請求 未請求 発明の数 2 (全15頁)

⑭ 発明の名称 発色性組成物

⑮ 特 願 昭58-182451

⑯ 出 願 昭58(1983)9月30日

⑰ 発 明 者 鈴 木 脩 一 川崎市幸区小向東芝町1番地 東京芝浦電気株式会社総合
研究所内
⑰ 発 明 者 和 田 守 叶 川崎市幸区小向東芝町1番地 東京芝浦電気株式会社総合
研究所内
⑰ 発 明 者 早 瀬 修 二 川崎市幸区小向東芝町1番地 東京芝浦電気株式会社総合
研究所内
⑰ 発 明 者 大 西 廉 伸 川崎市幸区小向東芝町1番地 東京芝浦電気株式会社総合
研究所内
⑰ 出 願 人 株 式 会 社 東 芝 川崎市幸区堀川町72番地
⑰ 代 理 人 弁 理 士 津 国 肇

明 細 書

1. 発明の名称

発色性組成物

2. 特許請求の範囲

1. (a) ロイコ化合物

(b) シラノール基及び/又はシラノール基を
生ずる置換基を有するケイ素化合物並び
に

(c) 有機金属化合物

から成ることを特徴とする発色性組成物。

2. 該有機金属化合物が、アルミニウム、タ
ン、クロム、ジルコニウム、亜鉛、コバルト、
鉄、銅、マンガン、バナジウム、ニッケル及
びホウ素からなる群より選ばれる少なくとも
1種の金属の化合物である特許請求の範囲第
1項記載の発色性組成物。

3. 該ケイ素化合物が、水の添加及び/又は加熱
によつてシラノール基を生ずるケイ素化合物
である特許請求の範囲第1項記載の発色性組
成物。

4. 該ケイ素化合物が、光照射によつてシラノ
ール基を生ずるケイ素化合物である特許請求
の範囲第1項記載の発色性組成物。

5. 該ケイ素化合物が、ペルオキシシラン基、
o-ニトロベンジルオキシ基、α-ケトシリ
ル基の少なくともいずれかを有するケイ素化
合物である特許請求の範囲第1項記載の発色性
組成物。

6. 該ケイ素化合物及び該有機金属化合物の配
合量が、該ロイコ化合物に対し、それぞれ2
重量%以上及び2重量%以上である特許請求
の範囲第1項記載の発色性組成物。

7. (a) ロイコ化合物

(b) シラノール基及び/又はシラノール基を
生ずる置換基を有するケイ素化合物

(c) 有機金属化合物並びに

(d) エガキシ化合物

から成ることを特徴とする発色性組成物。

8. 該有機金属化合物が、アルミニウム、タ
ン、クロム、ジルコニウム、亜鉛、コバルト、

鉄、銅、マンガン、バナジウム、ニッケル及びホウ素からなる群より選ばれる少なくとも1種の金属との化合物である特許請求の範囲第7項記載の発色性組成物。

9. 該ケイ素化合物が、水の添加及び又は加熱によつてシラノール基を生ずるケイ素化合物である特許請求の範囲第7項記載の発色性組成物。
10. 該ケイ素化合物が、光照射によつてシラノール基を生ずるケイ素化合物である特許請求の範囲第7項記載の発色性組成物。
11. 該ケイ素化合物が、ペルオキシシラン基、 α -ニトロベンジルオキシ基、 α -ケトシリル基の少なくともいずれかを有するケイ素化合物である特許請求の範囲第7項記載の発色性組成物。
12. 該ケイ素化合物、該有機金属化合物及び該エポキシ化合物の配合量が、該ロイコ化合物の重量に対し、それぞれ、2重量%以上、2重量%以上及び1~98重量%である特許請

発色の原理は、まず、ロイコ化合物と顔色剤とが熱融解し、ついで両者が反応して所定の色に発色する。

このため、例えば感熱紙などの製造に於て、基材（一般に紙）にロイコ化合物と顔色剤を予め接着塗料（バインダー）に混合しておき塗布する際、有機溶剤を用いると発色するため、水溶性以外は使えないという問題点があつた。

したがつて、バインダーとしてはポリビニルアルコール、ヒドロキシエチルセルロース、澱粉及びその変成物、ステレンアクリル酸共重合体など水溶性樹脂などに限定されるため、性能や目的用途など広い応用分野への適用が困難であつた。

また、ロイコ化合物から成る組成物において、光照射により発色させることができる組成物は未だ存在していない。

〔発明の目的〕

本発明の目的は上記した問題点の解消にあり、任意の発色方法を適用しても速発色性が優れ、かつ、溶剤系もしくは無溶剤系における発色の制御

が容易な発色性組成物の提供にある。

3. 発明の詳細な説明

〔発明の技術分野〕

本発明は新規な組成を有する発色性組成物に関し、更に詳しくは、任意の発色方法を適用しても速発色性が優れ、かつ溶剤系もしくは無溶剤系における発色の制御が容易な発色性組成物に関する。

〔発明の技術的背景とその問題点〕

マジックインキ、感熱記録紙、熱現像感光紙、示温インキ塗料、UV硬化レジン及び発色性インキ塗料等において、発色性組成物は広く用いられているが、更に、広範な応用分野への適用を容易にするためには任意の発色方法（例えば、光照射、加熱等）を適用して瞬時に発色させることができ、しかも、水系以外の溶剤系もしくは無溶剤系でも混合して利用できる発色性組成物が要求されている。

発色性組成物としては、無色ロイコ化合物と多価フェノール化合物もしくは有機酸とから成るものが知られているが、この発色性組成物における

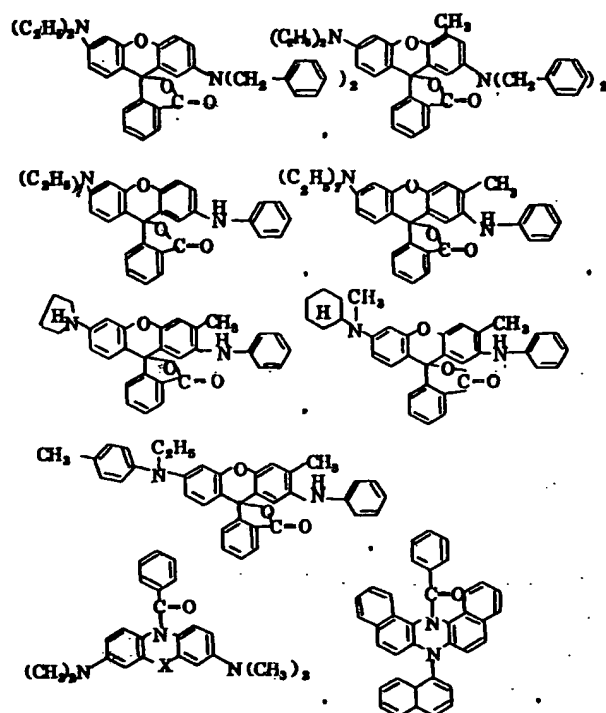
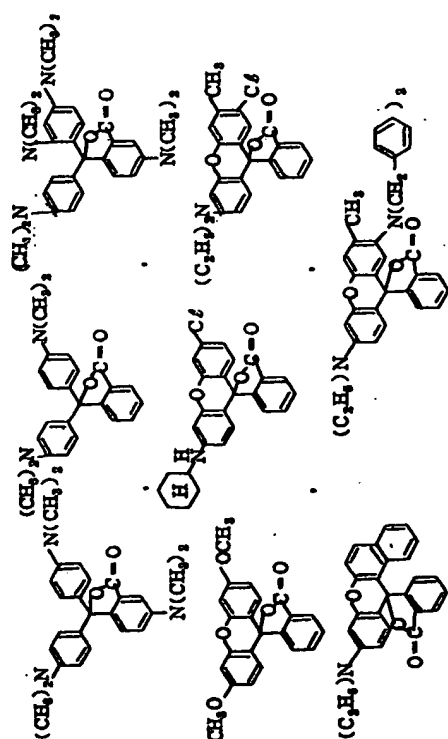
が容易な発色性組成物の提供にある。

〔発明の概要〕

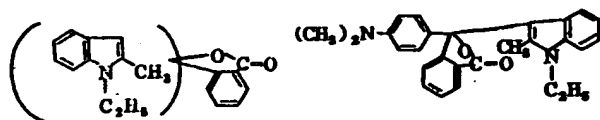
本発明の発色性組成物は、

- (a) ロイコ化合物
- (b) シラノール基及び又はシラノール基を生ずる置換基を有するケイ素化合物並びに
- (c) 有機金属化合物
- から成ることを特徴とするものであり、並びに、
- (a) ロイコ化合物
- (b) シラノール基及び又はシラノール基を生ずる置換基を有するケイ素化合物
- (c) 有機金属化合物並びに
- (d) エポキシ化合物
- から成ることを特徴とするものである。

本発明に使用されるロイコ化合物はトリフェニルフタリド系化合物、フルオラン系化合物、フェノチアジン系化合物、インドリルフタリド系化合物、リニューコオーラシン系化合物、スピロピラン系化合物、ローダシンラクタム系化合物、アザフタリド系化合物及びクロメインドール系化合物等が挙げられ、このような化合物の具体例としては、



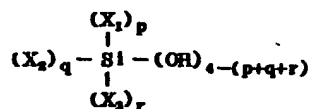
(式中、Xはイオウ原子又は酸素原子を抜くす)



等が挙げられ、これらから成る群より選ばれる1種もしくは2種以上のものが使用される。

本発明に使用されるケイ素化合物としては、シラノール基を有するケイ素化合物及びシラノール基を生ずる置換基を有するケイ素化合物が挙げられる。この後者のケイ素化合物としては、水の添加又は/及び加熱によりシラノール基を生ずるケイ素化合物、並びに光照射によりシラノール基を生ずるケイ素化合物が好ましいものとして挙げられる。また、光照射によりシラノール基を生ずるケイ素化合物としては、ペルオキシシラン基、 α -ニトロベンジルオキシ基、 α -ケトシリル基のいずれかを有するケイ素化合物がさらに好ましいものとして挙げられる。

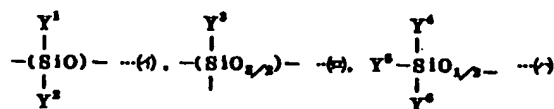
シラノール基を有するケイ素化合物としては、一般式：



(上式中、 X_1 、 X_2 及び X_3 は同一でも異なつてもよく、炭素原子数1~5個のアルキル基；フェニル基、トリル基、パラメトキシフェニル基、パラニトロフェニル基、パラクロルフェニル等のアリール基；ベンジル基、フェネチル基、パラメトキシベンジル基、パラメチルベンジル基等のアラルキル基；ビニル基、アリル基、プロペニル基、ブテニル等のアルケニル基；又はアセチル基、ベンゾイル基、トリフルオロアセチル基等のアシル基などを抜くす。 p 、 q 及び r は、0~3の整数で、 $p+q+r$ は3以下である。)で表わすことができ、本発明にとつてより好ましいものとしては、例えばジフェニルシランジオール、トリフェニルシラノール、ジフェニルメチルシラノール、フェニルビニルシランジオール、トリ(パラメトキシフェニル)シラノール、トリアセチルシラノール、ジフェニルエチルシラノール、ジフェニルプロピ

ルシラノール、トリ(パラニトロフェニル)シラノール、フェニルジビニルシラノール、2-ブテンジフェニルシラノール、2(2ペンテニル)フェニルシラノール、フェニルジプロピルシラノール、パラメタルベンジルジメタルシラノール、トリエチルシラノール、トリメチルシラノール、トリプロピルシラノール、トリブチルシラノール、トリイソブチルシラノールが挙げられる。

また、オルガノシロキサンは、下記の式(4)で表わされる二官能性単位及び/又は下記の式(5)で表わされる三官能性単位から成り、そのシロキサン鎖の末端が下記の式(6)で表わされる一官能性単位により封じられたものであつて、

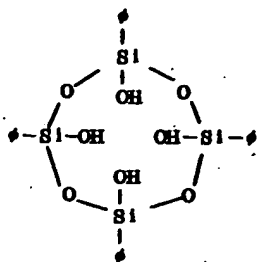


〔上式中、 $\text{Y}^1, \text{Y}^2, \text{Y}^3, \text{Y}^4, \text{Y}^5$ 及び Y^6 は同一でも異なつてもよく、水酸基；炭素原子数1~5のアルキル基；フェニル基、トリル基、パラメトキシフ

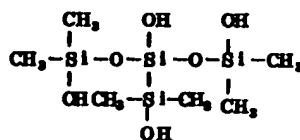
エニル、パラクロルフエニル、パラニトロフェニル等のアリール基；ベンジル基、フェネチル基、パラメトキシベンジル基、パラメチルベンジル等のアリール基；ビニル基、アリル基、プロペニル基、ブチニル基等のアルケニル基；アセチル基、ベンゾイル基、トリフルオロアセチル基のアシロキシ基等を表す。〕特に、構成単位の少なくとも一つが、シラノール性水酸基を少なくとも一つ含むものである。

上記オルガノシロキサンのうち、重合度が50以下で、シラノール水酸基当量が1000以下のものが本発明に適し、更には50~500であるものが好ましく、具体例としては、1, 3-ジヒドロキシ-1, 3-ジメチル-1, 3-ジフェニルジシロキサン、1, 5-ジヒドロキシ-1, 3, 5-トリメチル-1, 3, 5-トリフェニルトリシロキサン、1, 7-ジヒドロキシ-1, 3, 5, 7-テトラメチル-1, 3, 5, 7-テトラフェニルテトラシロキサン、1, 3-ジヒドロキシテトラフェニルジシロキサン、1, 5-ジヒドロキ

シヘキサフェニルトリシロキサン、1, 7-ジヒドロキシオクタフェニルテトラシロキサン、1, 5-ジヒドロキシ-3, 3-ジメチル-1, 1, 5, 5-テトラフェニルトリシロキサン、1, 3-ジヒドロキシテトラ(ジメチルフェニル)ジシロキサン、1, 5-ジヒドロキシヘキサエチルトリシロキサン、1, 7-ジヒドロキシオクタプロピルテトラシロキサン、1, 3, 5-トリヒドロキシ-3-エチル-1, 1, 5, 5-テトラメチルトリシロキサン、1, 5-ジヒドロキシ-1, 1, 5, 5-テトラフェニル-3, 3-ジプロピルトリシロキサン、

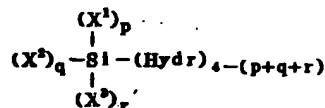


(ϕ :フェニル)



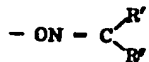
等があり、またSH6018(トーレスリコーン樹液；水酸基当量400、分子量1600のメチルフェニルポリシロキサン)などの商品名で入手し得るシリコーン樹脂も使用することができる。

シラノール基を生ずるケイ素化合物としては、水の添加及び/又は加熱によつてシラノール基を生ずるケイ素化合物が挙げられる。このようなケイ素化合物としては、一般式：



〔上式中、Hydrは加水分解性基を意味し、ケイ素原子に直接した残基で、水の存在下一定温度以上で加水分解してシラノール性水酸基($\text{Si}-\text{OH}$)を生成する残基であり、例えば炭素原子数1~5個のアルコキシ基；フェノキシ基、トリルオキ

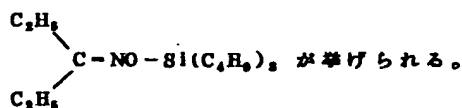
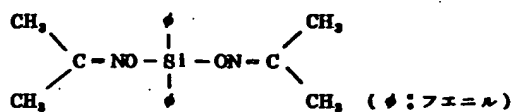
シ基、パラメトキシフェノキシ基、パラニトロフエノキシ基、ベンジルオキシ基、パラクロルフェノキシ基等のアリールオキシ基；アセトキシ基、プロピオニルオキシ基、ブタノイルオキシ基、ベンゾイルオキシ基、フェニルアセトキシ基、ホルミルオキシ基等のアシルオキシ基；次式：



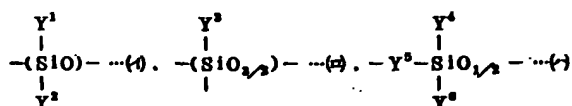
〔式中、R'とR''は同一でも異なつてもよく、炭素原子数1～5個のアルキル基である〕で表わされる残基などである。X¹、X²及びX³は同一でも異なつてもよく、炭素原子数1～5個のアルキル基；フェニル基、トリル基、パラメトキシフェニル基、パラクロルフェニル基、パラニトロフェニル基等のアリール基；ベンジル基、フエネチル基、パラメトキシベンジル基、パラメチルベンジル基等のアラキル基；ビニル基、アリル基、プロペニル基、ブタニル基等のアルケニル基又はアセチル基、ベンゾイル基、トリフルオロアセチル基等のアシル基などを表わす。p、q及びrは、0～3の整

数で、p+q+rは3以下である。〕で表わされ、上記のオルガノシロキサンのうち、本発明に於てより好ましいものとしては、例えばトリフェニルメトキシシラン、ジフェニルジメトキシシラン、トリフェニルエトキシシラン、ジフェニルメチルメトキシシラン、フェニルビニルメチルメトキシシラン、ジフェニルジエトキシシラン、トリ（パラメトキシフェニル）メトキシシラン、トリアセチルメトキシシラン、ジフェニルエチルエトキシシラン、ジフェニルプロピルエトキシシラン、ジフェニルジプロピオニルオキシシラン、ジフェニルメチルトリフェニルアセトキシシラン、トリ（パラニトロフェニル）メトキシシラン、トリアセチルメトキシシラン、フェニルジビニルプロポキシシラン、2-ブタニルジフェニルメトキシシラン、ジ（2-ペンタニル）フェニルエトキシシラン、フェニルジプロピルメトキシシラン、トリ（パラメトキシフェニル）エトキシシラン、パラメチルベンジルトリメトキシシラン、トリフルオロアセチルトリメトキシシラン、ジ（パラクロルフェニ

ル）ジエトキシシラン、トリエチルメトキシシラン、トリメチルメトキシシラン、トリプロピルメトキシシラン、トリブチルエトキシシラン、トリイソブチルアセトキシシラン、



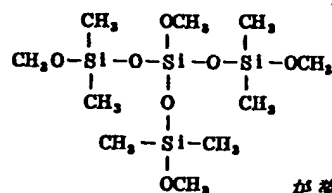
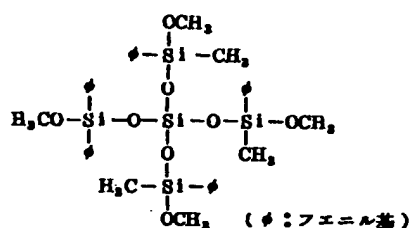
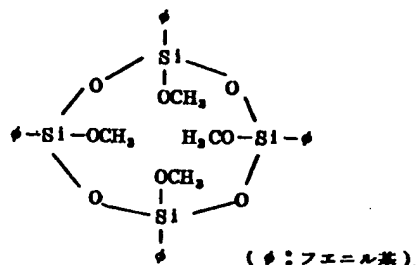
また、オルガノシロキサンは、下記の式(1)で表わされる二官能性単位及び／又は下記の式(2)で表わされる三官能性単位から成り、そのシロキサン鎖の末端が下記の式(1)で表わされる一官能性単位により封じられたものであつて、



〔上式中、Y¹、Y²、Y³、Y⁴及びY⁵は同一でも異なつてもよく、加水分解性基；炭素原子数1～5個のアルキル基；フェニル基、トリル基、パラメトキシフェニル、パラクロルフェニル、パラシアノフェニル等のアリール基；ベンジル基、フエネチル基、パラメトキシベンジル基、パラメチルベンジル等のアラキル基；ビニル基、アリル基、プロペニル基、ブタニル等のアルケニル基；アセチル基、ベンゾイル基、トリフルオロアセチル基等のアシル基などを表す〕特に、構成単位の少なくとも一つが、加水分解性基を少なくとも一つ含むものである。

上記オルガノシロキサンのうち、重合度が50以下で、加水分解性基当量が1000以下のものが本発明に適し、更には50～500であるものが好ましく、具体例としては、1,3-ジメトキシ-1,3-ジメチル-1,3-ジフェニルジシロキサン、1,5-ジエトキシ-1,3,5-トリメチル-1,3,5-トリフェニルトリシロキサン、1,7-ジメトキシ-1,3,5,7-テト

ラメタル-1, 3, 5, 7-テトラフェニルシリシロキサン, 1, 3-ジメトキシテトラフェニルシリシロキサン, 1, 5-ジメトキシ-3, 3-ジメタル-1, 5-テトラフェニルトリシロキサン, 1, 3, 5-トリメトキシペンタフェニルトリシロキサン, 1, 5-ジメトキシヘキサ(p-メトキシフェニル)トリシロキサン,



が挙げられる。

本発明に使用されるシラノール基を生ずるケイ素化合物としては、光照射によつてシラノール基を生ずる化合物が挙げられる。

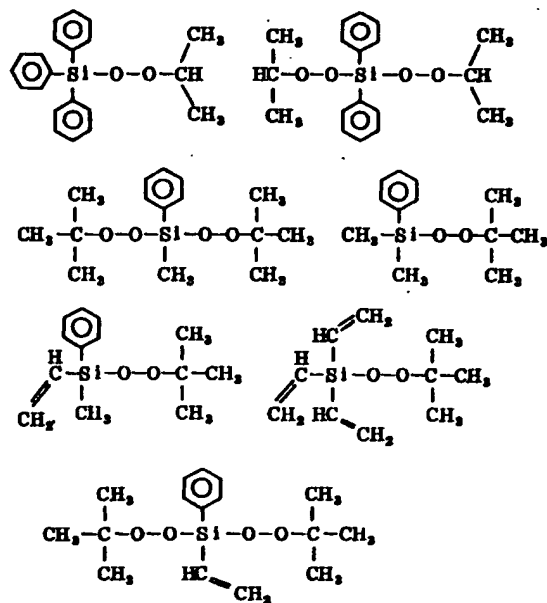
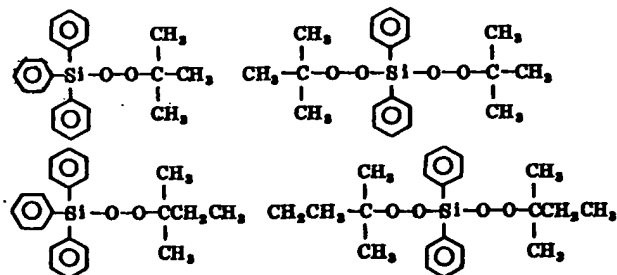
このようなケイ素化合物としては、ペルオキシシラン基、o-ニトロベンジルオキシ基、α-ケトシリル基のいずれかを有するケイ素化合物であることが好ましい。

これらケイ素化合物のうち、ペルオキシシラン基を有するものは次式： $(R^1)_n-Si(O-O-R^2)_{4-n}$ (式中、 R^1, R^2 は同一であつて異なつていてもよく、それぞれ、水素原子、ハロゲン原子、炭素数1~5のアルキル基若しくはアリール基を表わし、 n は0~3の整数を表わす。)で示される化合物である。

上記式中、炭素数1~5のアルキル基としては、

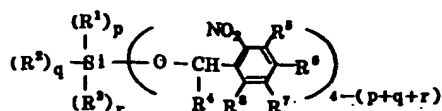
例えば、メチル基、エチル基、イソプロピル基、n-プロピル基、n-ブチル基、i-ブチル基、sec-ブチル基、n-ペンチル基、メトキシ基、エトキシ基、クロルメチル基が挙げられ；アリール基としては、例えば、フェニル基、ナフチル基、アントラニル基、ベンジル基が挙げられ；炭素数1~5のアルキル基及びアリール基は、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、メトキシ基等の置換基を有していてもよい。

このようなケイ素化合物の具体例としては、次式：



で示される化合物等が挙げられる。

また、o-ニトロベンジルオキシ基を有するものは、次式：

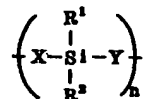


(式中、 R^1, R^2, R^3 は同一であつても異なつていてもよく、それぞれ、水素原子；ハロゲン原子；ビニル基；アリル基；炭素数1～10の非置換若しくは置換アルキル基；炭素数1～10のアルコキシ基；非置換若しくは置換アリール基；アリールオキシ基；シロキシ基を表わし、 R^4 は水素原子；炭素数1～10の非置換若しくは置換アルキル基；フェニル基；置換フェニル基を表わし、 R^5, R^6, R^7, R^8 は同一であつても異なつていてもよく、それぞれ、水素原子；ニトロ基；シアノ基；ヒドロキシ基；メルカプト基；ハロゲン原子；アセチル基；アリル基；炭素数1～5のアルキル基；炭素数1～5のアルコキシ基；非置換若しくは置換アリール基；アリールオキシ基を表わし、 p, q, r は $0 \leq p, q, r \leq 3, 1 \leq p+q+r \leq 3$ の条件を満たす整数を表わす。)

で示される化合物である。

炭素数1～10の非置換若しくは置換アルキル基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、イソブチル基、ペンチル基、クロロメチル基、クロロエチル基、フルオロメチル基、シアノメチル基などがあげられ、炭素数1～10のアルコキシ基としてはメトキシ基、エトキシ基、 n -プロポキシ基、 n -ブトキシ基などがあげられる。非置換若しくは置換アリール基としては、フェニル基、 p -メトキシフェニル基、 p -クロロフェニル基、 p -トリフルオロメチルフェニル基などがあげられ、アリールオキシ基としてはフェノキシ基などがあげられる。

また、ケイ素化合物としては、 o -ニトロベンジルオキシシリル基を末端基とし、主鎖が次式：



(式中、 n は0又は1以上の整数を表わし； R^1 及び R^2 は前記と同様の意味を有し； X, Y は、

同一でも異なつていてもよく、各々、酸素原子、アルキレン基、アリール基等を表わす。)

で示される基から成る化合物であつてもよい。

本発明に用いる、ケイ素原子に直接結合した非置換若しくは置換 o -ニトロベンジルオキシ基を有するケイ素化合物の具体例としては、

トリメチル(o -ニトロベンジルオキシ)シラン

ジメチルフェニル(o -ニトロベンジルオキシ)シラン

ジフェニルメチル(o -ニトロベンジルオキシ)シラン

トリフェニル(o -ニトロベンジルオキシ)シラン

ビニルメチルフェニル(o -ニトロベンジルオキシ)シラン

イソブチルメチルフェニル(o -ニトロベンジルオキシ)シラン

トリエチル(o -ニトロベンジルオキシ)シラン

トリ(2-クロロエチル)- o -ニトロベンジルオキシシラン

トリ(p -トリフルオロメチルフェニル)- o -ニトロベンジルオキシシラン

トリメチル[α -(o -ニトロフェニル)- o -ニトロベンジルオキシ]シラン

ジメチルフェニル[α -(o -ニトロフェニル)- o -ニトロベンジルオキシ]シラン

メチルフェニルジ[α -(o -ニトロフェニル)- o -ニトロベンジルオキシ]シラン

トリフェニル(α -エチル- o -ニトロベンジルオキシ)シラン

トリメチル(3-メチル-2-ニトロベンジルオキシ)シラン

ジメチルフェニル(3,4,5-トリメトキシ-2-ニトロベンジルオキシ)シラン

トリフェニル(4,5,6-トリメトキシ-2-ニトロベンジルオキシ)シラン

ジフェニルメチル(5-メチル-4-メトキシ-2-ニトロベンジルオキシ)シラン

トリフェニル(4,5-ジメチル-2-ニトロベンジルオキシ)シラン

ビニルメチルフェニル(4,5-ジクロロ-2-ニトロベンジルオキシ)シラン

トリフェニル(2,6-ジニトロベンジルオキシ)シラン

ジフェニルメチル(2,4-ジニトロベンジルオキシ)シラン

トリフェニル(3-メトキシ-2-ニトロベンジルオキシ)シラン

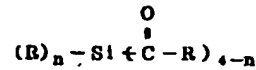
ビニルメチルフェニル(3,4-ジメトキシ-2-ニトロベンジルオキシ)シラン

ジメチルジ(0-ニトロベンジルオキシ)シラン
 メチルフェニルジ(0-ニトロベンジルオキシ)シラン
 ビニルフェニルジ(0-ニトロベンジルオキシ)シラン
 t-ブチルフェニルジ(0-ニトロベンジルオキシ)シラン
 ジエチルジ(0-ニトロベンジルオキシ)シラン
 2-クロロエチルフェニルジ(0-ニトロベンジルオキシ)シラン
 ジフェニルジ(0-ニトロベンジルオキシ)シラン
 ジフェニルジ(3-メトキシ-2-ニトロベンジルオキシ)シラン
 ジフェニルジ(3,4-ジメトキシ-2-ニトロベンジルオキシ)シラン
 ジフェニルジ(2,6-ジニトロベンジルオキシ)シラン
 ジフェニルジ(2,4-ジニトロベンジルオキシ)シラン
 メチルトリ(0-ニトロベンジルオキシ)シラン
 フェニルトリ(0-ニトロベンジルオキシ)シラン
 p-ビス(0-ニトロベンジルオキシジメチルシリル)ベンゼン
 1,1,3,3-テトラフェニル-1,3-ジ(0-ニトロベンジルオキシ)シロキサン
 1,1,3,3,5,5-ヘキサフェニル-1,3-ジ(0-ニ

トロベンジルオキシ)シロキサン

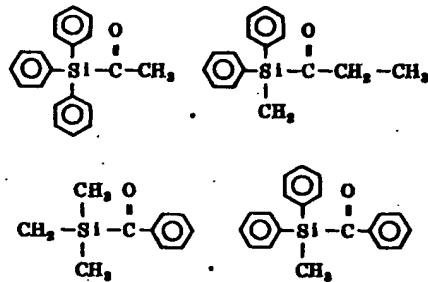
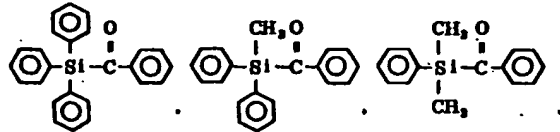
及び SiC₆ 含有シリコン樹脂と0-ニトロベンジルアルコールとの反応により生成するケイ素化合物等があげられる。

最後に、α-ケトシリル基を有するものは、次式：



(式中、nは0, 1, 2, 3の数を表わし；Rは炭素数1~10のアルキル基、ビニル基、アリル基、アリール基などの炭化水素基、アリールオキシ基、炭素数1~10のアルコキシ基を表わし、これらはハロゲン原子、NO₂, CN, -OCH₃などの置換基を分子内に有していてもよい。)で示される化合物である。

具体的には、



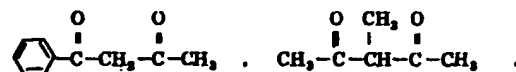
などの化合物をあげることができる。

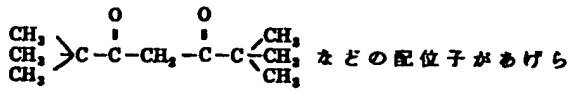
これらのケイ素化合物の添加配合量は、ロイコ化合物に対し、2重量%以上、好ましくは5重量%以上の範囲である。配合量が2重量%未満の場合には発色が十分でないため好ましくない。

本発明に使用される有機金属化合物は、有機基と金属原子とが結合して形成された化合物であり、好ましくは、アルミニウム、チタン、クロム、ジルコニウム、亜鉛、コバルト、鉄、銅、マンガン、バナジウム、ニッケル、ホウ素等の金属原子に有機基としてアルコキシ基、アシルオキシ基、β-ジケトン基、o-カルボニルフェノート基等が

結合した化合物である。

ここで、アルコキシ基としては炭素数1~10のものが好ましく、メトキシ、エトキシ、イソプロポキシ、ブトキシ、ペントオキシなどがあげられ；フェノキシ基としては、フェノキシ基、o-メチルフェノキシ基、p-メトキシフェノキシ基、p-ニトロフェノキシ基、2,6-ジメチルフェノキシ基などがあげられ；アシルオキシ基としては、アセト、プロピオナト、イソプロピオナト、ブチラト、ステアラト、エチルアセトアセト、プロピルアセトアセト、ブチルアセトアセト、ジエチルマラト、ジビバロイルメタナトなどの配位子があげられ；β-ジケトン基としては、例えば、アセチルアセトナト、トリフルオロアセチルアセトナト、ヘキサフルオロアセチルアセトナト、



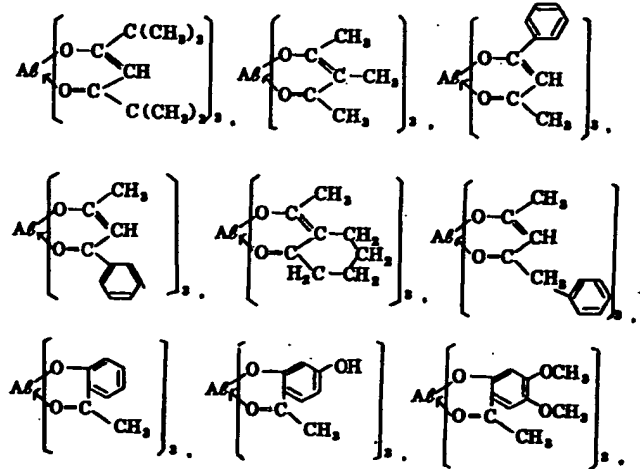


れ； α -カルボニルフェノラト基としては、例えば、サリチルアルデヒドがあげられる。

前記金属原子のうち、とくに発色性が強いのはアルミニウムである。

このようなアルミニウム化合物の具体例としては、トリスメトキシアルミニウム、トリスエトキシアルミニウム、トリスイソプロポキシアルミニウム、トリスフェノキシアルミニウム、トリスパラメチルフェノキシアルミニウム、イソプロポキシジエトキシアルミニウム、トリスブトキシアルミニウム、トリスアセトキシアルミニウム、トリスステアラトアルミニウム、トリスプロピオナトアルミニウム、トリスイソプロピオナトアルミニウム、トリスアセチルアセトナトアルミニウム、トリストリフルオロアセチルアセトナトアルミニウム、トリスヘキサフルオロアセチルアセトナトアルミニウム、トリスエチルアセトアセトアル

ミニウム、トリスサリチルアルデヒドアルミニウム、トリスジエチルマロラトアルミニウム、トリスプロピルアセトアセトアルミニウム、トリスブチルアセトアセトアルミニウム、トリスジビロイルメタナトアルミニウム、ジアセチルアセトナトジビロイルメタナトアルミニウム



これらの有機金属化合物の添加配合量は、ロイコ化合物に対し、2重量%以上、好ましくは5重量%以上の範囲である。

配合量が2重量%未満の場合には発色が十分でないため好ましくない。

本発明の他の発色性組成物は前記した成分に、更にエポキシ樹脂を添加配合して成るものである。

本発明に使用される成分となるエポキシ樹脂は通常知られているものであり、特に限定されない。例えばビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、脂環式エポキシ樹脂、トリグリシジルイソシアネートやヒダントインエポキシの如き含複素環エポキシ樹脂、水添ビスフェノールA型エポキシ樹脂、プロピレングリコール・ジグリシジルエーテルやペンタエリスリトール・ポ

リグリシジルエーテルなどの脂肪族系エポキシ樹脂、芳香族、脂肪族もしくは脂環式のカルボン酸とエピクロルヒドリンとの反応によつて得られるエポキシ樹脂、スピロ環含有エポキシ樹脂、オルソ・アリル・フェノール、ノボラック化合物とエピクロルヒドリンとの反応生成物であるグリシジルエーテル型エポキシ樹脂、ビスフェノールAのそれぞれの水酸基のオルソ位にアリル基を有するジアリルビスフェノール化合物とエピクロルヒドリンとの反応生成物であるグリシジルエーテル型エポキシ樹脂などのいずれを用いても差支えない。

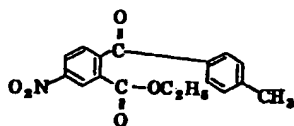
これらのエポキシ樹脂の添加配合量は、ロイコ化合物に対し、1~98重量%、好ましくは2~90重量%の範囲である。配合量が1重量%未満の場合には硬化物がもろく、強靱な成形物や塗膜が得られず、98重量%を超える場合には発色が十分とならないからである。

本発明において必要に応じて使用される光増感剤は、前記化合物を光増感することが可能なものであればいかなるものでも使用可能であり、本発

明の光硬化性エポキシ系化合物及び光源等に応じて適宜選定される。

このような光増感剤としては、例えば、芳香族炭化水素、ベンゾフェノン及びその誘導体、*o*-ベンゾイル安息香酸エステル、アセトフェノン及びその誘導体、ベンゾイン並びにベンゾインエーテル及びその誘導体、キサントン及びその誘導体、テオキサントン及びその誘導体、ジスルフィド化合物、キノン系化合物、ハロゲン化炭化水素及びアミン類等が挙げられる。

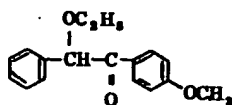
芳香族炭化水素の具体例としては、ベンゼン、ベンゼン- d_6 、トルエン、*p*-キシレン、フルオロベンゼン、クロロベンゼン、ブロモベンゼン、ヨードベンゼン、ナフタレン、1-メチルナフタレン、2-メチルナフタレン、1-フルオロナフタレン、1-クロロナフタレン、2-クロロナフタレン、1-ブロモナフタレン、2-ブロモナフタレン、1-ヨードナフタレン、2-ヨードナフタレン、1-ナフトール、2-ナフトール、ビフェニル、フルオレン、*p*-テルフェニル、アセナ



等が挙げられる。

アセトフェノン及びその誘導体としては、例えば、アセトフェノン、4-メチルアセトフェノン、3-メチルアセトフェノン及び3-メトキシアセトフェノン等が挙げられる。

ベンゾイン並びにベンゾインエーテル及びその誘導体としては、例えば、ベンゾイン、ベンゾインメチルエーテル、ベンゾインエチルエーテル、ベンゾイン *iso*-プロピルエーテル、ベンゾイン *n*-ブチルエーテル、ベンゾイントリフェニルシリルエーテル、



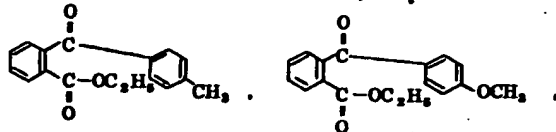
等が挙げられる。

キサントン及びその誘導体としては、例えば、

フテン、*p*-クアテルフェニル、トリフェニレン、フエナントレン、アズレン、フルオランテン、クリセン、ピレン、1,2-ベンズピレン、アントラセン、1,2-ベンズアントラセン、9,10-ジクロロアントラセン、9,10-ジブromoアントラセン、9,10-ジフェニルアントラセン、ペリレン、テトラセン及びペンタセン等が挙げられる。

ベンゾフェノン及びその誘導体としては、例えば、ベンゾフェノン、2,4-ジメチルベンゾフェノン、2,4-ジクロロベンゾフェノン及び4,4'-ビス(ジメチルアミノ)ベンゾフェノン等が挙げられる。

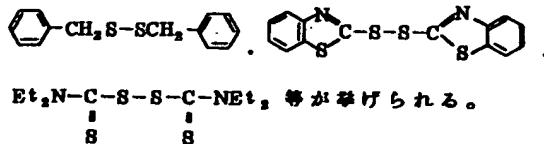
o-ベンゾイル安息香酸エステルとしては、例えば、*o*-ベンゾイル安息香酸メチルエステル、*o*-ベンゾイル安息香酸エチルエステル、*o*-ベンゾイル安息香酸フェニルエステル、



キサントン、2,4-ジメチルキサントン及び2,4-ジクロロキサントン等が挙げられる。

テオキサントン及びその誘導体としては、例えば、テオキサントン、2,4-ジメチルテオキサントン及び2,4-ジクロロテオキサントン等が挙げられる。

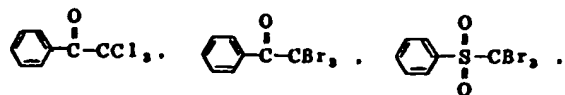
ジスルフィド化合物としては、例えば、

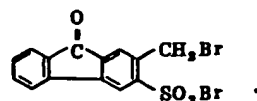
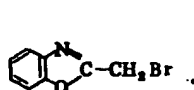
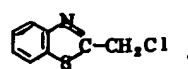
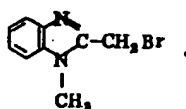
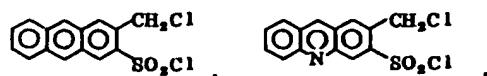
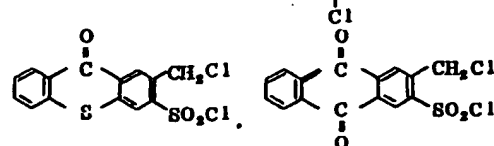
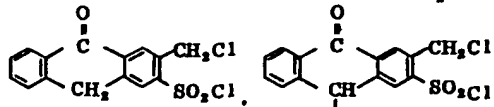
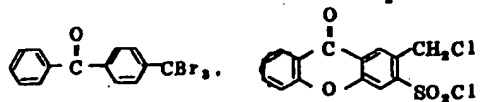
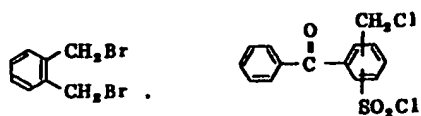


$\text{Et}_2\text{N}-\underset{\text{S}}{\text{C}}-\text{S}-\underset{\text{S}}{\text{C}}-\text{NEt}_2$ 等が挙げられる。

キノン系化合物としては、例えば、ベンゾキノン、ナフトキノン、アントラキノン、5,12-ナフエタセンジオン及び2,7-ピレンジオン等が挙げられる。

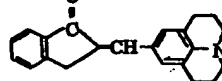
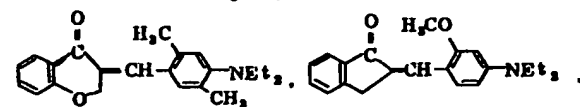
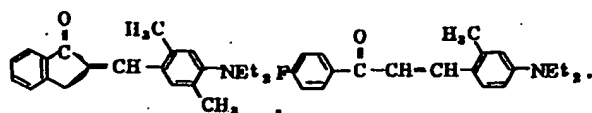
ハロゲン化炭化水素としては、例えば、四塩化炭素、ヘキサクロロエタン、四臭化炭素、





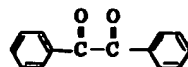
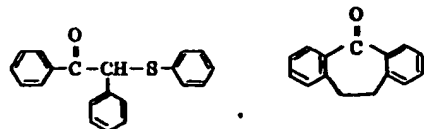
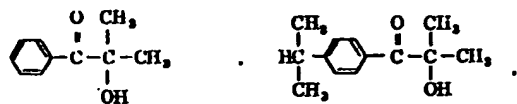
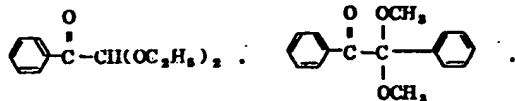
等が挙げられる。

アミン類としては、例えば、ジフェニルアミン、カルバゾール、トリフェニルアミン、



等が挙げられる。

その他のものとしては、プロピオフェノン、アントロン、ベンズアルデヒド、ブチロフェノン、2-ナフトアルデヒド、2-ナフトアルデヒド、2-アセトナフトン、1-ナフトアルデヒド、フルオレノン、1-フェニル-1,2-プロパンジオン、ベンゾエトリル、アセトン、ピアセチル、アクリジンオレンジ、アクリジン、ローダミンB、エオシン、フルオレセイン、



等が挙げられる。

本発明の発色性組成物は、シリカ、アルミナ及び炭酸カルシウム等の無機質充填剤並びに顔料等を適宜に添加配合してもよい。

以下、本発明の実施例を掲げ、更に詳しく説明する。

(発明の実施例)

実施例 1 ~ 22

ロイコ化合物としてクリスタルバイオレットラクトン5ヲをメチルエタノールに200℃に溶解した溶液(A)を、ケイ素化合物としてトリフェニルシラン5ヲをメチルエタノールに溶解した溶液(B)を、及び有機金属化合物として表-1に示した各金属のアセチルアセトネート化合物を、それぞれ、メチルエタノールに溶解した溶液を用いて本発明の発色性組成物を得た。

比較例

実施例1～11で使した溶液(A)及び(B)を用いて組成物を調製した。

実施例1～11及び比較例における発色性の評価試験は次のようにして行つた。

白紙の上に20mm×150mmのガラス板を置き、溶液(A)0.2CCをスポイトで採取し、適宜ガラス板上にたらしめたのち、更に有機金属化合物の溶液を別のスポイトで採取・添加して発色の有無状況を観察した。更に、溶液(B)0.1CCを別のスポイトで採取・添加して発色の有無状況を観察した。なお、比較例は溶液(A)に溶液(B)を添加したときの発色の有無状況を観察した。結果を表-1に示す。

表 - 1

実施例	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20	21	22	比較例
	Al(acac) ₃		Ti(acac) ₃		Cr(acac) ₃		Zr(acac) ₄		Zn(acac) ₂		Co(acac) ₃		Cu(acac) ₂		Fe(acac) ₃		Mn(acac) ₃		V(acac) ₃		Ni(acac) ₂		
④液+		+		+		+		+		+		+		+		+		+		+		+	+ ④液
		④液		④液		④液		④液		④液		④液		④液		④液		④液		④液		④液	
発色の有無	×	○	×	○	×	○	×	○	×	○	×	○	×	○	×	○	×	○	×	○	×	○	×

(注) ×=発色無し、○=発色有り

実施例 2 3

ロイコ化合物としてマラカイトグリーンラクトン5gを、ケイ素化合物としてジエトキシジフェニルシラン5gを、及び有機金属化合物としてトリセチルアセトアセトネートアルミニウム5gをメチルエチルケトン200CCに溶解して本発明の発色性組成物を得た。

得られた発色性組成物をガラス板上に塗布し、30分間風乾した。発色状況は認められなかった。このガラス板を100℃～150℃で加熱したところ緑色に発色した。

実施例 2 4

実施例23のジエトキシジフェニルシランの代りにトリフェニルメトキシシランを用い、0.1CCの水を加えるほかは、実施例23と同様にして発色性を調べた結果、同様に緑色に発色した。

実施例 2 5

ロイコ化合物としてフルオラン系のローダミンラクトン5gを、有機金属化合物としてトリセチルアセトアセトネートアルミニウム5gを、及びケ

を、及びケイ素化合物としてトリフェニルシラノール5gをテトラヒドロフラン200CCに添加混合して本発明の発色性組成物を得た。得られた発色性組成物をガラス板上に塗布したところ発色が認められた。

実施例 2 9

実施例28のトリフェニルシラノールの代りにトリフェニルターシャリブテルベルオキシシラン5gを用いる他は実施例28と同様の組成に混合し、これをガラス板上に塗布したのち、80W/cm²の2KWの高圧水銀灯を備えた紫外線照射装置に導入し、10cmの距離から5秒間照射して取り出したところ、発色が認められた。

実施例 3 0～5 1

ロイコ化合物としてクリスタルバイオレットラクトン5gをメチルエチルケトン200CCに溶解した溶液(A)を、ケイ素化合物としてトリフェニルシラノール5gをメチルエチルケトンに溶解した溶液(B)を、有機金属化合物として表-1に示した各金属のアセチルアセトネート化合物を、それぞ

い基化合物としてトリフェニルオルトニトロベンジルシリルエーテル5gをメチルエチルケトンに溶解して本発明の発色性組成物を得た。得られた発色性組成物をポリエチレンテレフタレートフィルムに塗布、風乾した。この状態では発色は認められなかった。このフィルムを80W/cm²の2KWの高圧水銀灯を備えた紫外線照射装置に導入し、10cmの距離で1～5秒間保つた後、取出したところ発色が認められた。

実施例 2 6、2 7

実施例25のトリフェニルオルトニトロベンジルシリルエーテルの代りに、トリフェニルベンゾイルシラン、あるいはトリフェニルターシャリブテルベルオキシシランを用いるほかは実施例25とまったく同様にして発色を調べたところいずれも発色が認められた。

実施例 2 8

ロイコ化合物として3-ピリジノ-6-メチル-7-アニリノフルオラン5gを、有機金属化合物としてジ-アセチルアセトネートシタネート5g

れ、メチルエチルケトンに溶解した溶液を、及びエポキシ樹脂としてセロキサイド2021(商品名、チッソ製、脂環式エポキシ)100gを用いて本発明の発色性組成物を得た。

比較例

実施例30～51で使用した溶液(A)及び(B)を用いて組成物を調製した。実施例30～51及び比較例における発色性の評価試験は次のようにして行つた。

白紙の上に20cm×150cmのガラス板を置き、溶液(A)0.2CCをスポイトで採取し、適宜ガラス板上にたらしめたのち、更に有機金属化合物の溶液を別のスポイトで採取・添加して発色の有無状況を観察した。更に、溶液(B)0.2CCを別のスポイトで採取・添加し、風乾し150℃で1時間硬化反応をした後、発色の有無及び硬化状況を観察した。なお、比較例は溶液(A)に溶液(B)を添加したときの発色の有無状況を観察した。結果を表-2に示す。

無＝硬化しない， 有＝硬化する

— 422 —

特開昭 60- 72961(15)

31 歌

		実施例52	実施例53	実施例54	実施例55	実施例56	実施例57
ロ化イオン	M, G	1	—	1	—	1	—
モリブデン	PMAF	—	1	—	1	—	1
ニッケル	セリヤイト2021	100	100	100	80	80	70
銅	エポコート 828	—	—	—	20	20	30
有機溶剤	TEAACA	1.0	—	—	—	—	—
有機溶剤	TPAA	—	1.0	—	—	—	—
有機溶剤	TAANA	—	—	0.5	—	—	—
有機溶剤	TSAA	—	—	0.5	—	—	—
有機溶剤	a	2.0	—	2.0	4.0	4.0	4.0
有機溶剤	b	—	—	—	—	—	—
有機溶剤	c	—	—	1.0	—	—	—
増量剤	ベンゾアエノン	0.5	—	0.5	0.5	—	0.5
増量剤	テオヤントン	—	0.5	—	—	0.5	—
増量剤	炭色の顔料	有	有	有	有	有	有
測定	炭膜の厚み (μm)	15	15	15	10	10	10
測定	指触乾燥度	1	1	1	2	3	3
結果	鉛筆硬度	2H	2H	2H	H	H	H
結果	密着性 (°)	95/100	95/100	93/100	100/100	97/100	98/100

(・100個のゴペン目のうち残ったゴペン目の数)

-423-